

PCT/JP2004/018411

13.12.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年 1 2 月    9 日  
Date of Application:

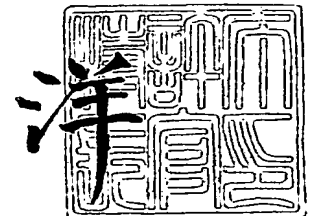
出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 4 1 0 0 1 4  
Application Number:  
[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 3 - 4 1 0 0 1 4 ]

出    願    人            松 下 電 器 産 業 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

2 0 0 5 年    1 月 2 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



出証番号    出証特 2 0 0 5 - 3 0 0 3 2 9 8

【書類名】 特許願  
【整理番号】 2033750087  
【提出日】 平成15年12月 9日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 B29B 7/04  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内  
    【氏名】 向井 裕二  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内  
    【氏名】 前西 晃  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内  
    【氏名】 田村 佳央  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内  
    【氏名】 吉田 豊  
【発明者】  
    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内  
    【氏名】 麻生 智倫  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000005821  
    【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100097445  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 岩橋 文雄  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100103355  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 坂口 智康  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100109667  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 内藤 浩樹  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 011305  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 9809938

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

原料と水蒸気の混合ガスから水蒸気改質反応により水素を含む改質ガスを生成するための改質触媒層と、前記改質触媒層を加熱するための燃焼ガスを発生する燃焼部と、前記燃焼部により生成した燃焼ガスが流れる燃焼ガス流路と、前記燃焼ガス流路の周囲に設けられた筒状の隔壁を介して前記燃焼ガスと伝熱可能なように構成され、供給された前記原料及び水から前記混合ガスを生成する蒸発部とを備え、前記蒸発部と前記改質触媒層が、前記筒状隔壁の一端の全周囲から混合ガスが改質触媒層に流れ込むよう形成された筒状空間によって接続した水素生成装置。

**【請求項 2】**

筒状空間に多孔質充填物を備える請求項 1 記載の水素生成装置。

**【請求項 3】**

筒状空間を 2 分することによって前記原料と水蒸気の混合ガスの流れを 2 分し、前記混合ガスの流れが筒状隔壁の中心軸を中心として互いに反対方向へ略 90 度回転する流路を設けた水素生成装置。

**【請求項 4】**

筒状空間の間に前記原料と水蒸気の混合ガスの流れを 2 分する板材と、前記板材の両面に各面から見て同一方向に渦巻き形状の流路とが形成され、混合ガスの流れが前記中心軸を中心として互いに反対方向へ略 90 度回転するよう構成されている請求項 3 記載の水素生成装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】水素生成装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、水素を用いて発電を行なう燃料電池発電装置に、少なくとも炭素と水素から構成される有機化合物を含む原料と水を反応させて水素を生成して供給する水素生成器、及び水素生成器用の原料化合物と水蒸気のガス混合器に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池発電装置に供給する水素の生成方法としては、水蒸気改質反応が一般的に用いられている。この反応は、例えば原料となる都市ガスと水蒸気をルテニウム触媒を用いて600～800℃程度の高温で反応させることにより、水素を主成分とした改質ガスを生成するものである。

【0003】

燃料電池に用いる水素生成器の具体的な例としては、例えば、特許文献1に記載された多重同心円筒状のものがある。

【0004】

この水素生成器の概略構造を図9に示す。図中1は水素生成器全体を示すが、改質ガス中に含まれる一酸化炭素を除去する変成反応器や選択酸化反応器、および燃料電池本体は省略している。なお、図中の矢印はガスの流れ方向を表わしている。2は都市ガス供給配管、3は水供給配管、4は燃焼バーナー、5から8は燃焼バーナー4によって生成した燃焼ガスの流路、9は燃焼ガス排気口、10は原料ガスと水の流下流路、11は原料ガスと水蒸気の混合した混合ガスの上昇流路であり、水素生成装置の中心軸に対して同心円筒状に広がっている。この両流路によって蒸発器12を構成するとともに原料ガスと水蒸気の混合を行なっている。蒸発器12内で円周方向に広がるように存在している原料ガスと水蒸気の混合ガスは、供給配管13に集合して改質触媒を充填した改質触媒層14に供給され、燃焼ガス流路5を流れる燃焼ガスによって高温に加熱されて、水素と二酸化炭素と一酸化炭素を含んだ改質ガスとなる。改質ガスは改質ガス流路15を通り、出口配管16から一酸化炭素濃度を削減するための変成反応器へと供給される。

【0005】

本技術では最も温度の低い蒸発器12を外周部に配置することによって周囲への放熱を抑制し水素生成装置の熱効率の向上を図っている。

【特許文献1】特開2003-252604号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかし、上記従来技術では、都市ガスと水蒸気の混合が不十分であり改質ガスの濃度が周期的に変動してしまうという課題があった。この濃度変化に対応して、所定量の水素を得るために使用する改質触媒の量や、改質反応後の一酸化炭素を除去する変成触媒や選択酸化触媒の量が余分に必要になるという課題があった。

【0007】

なお、改質ガスの濃度が変動する原因は、都市ガスと水蒸気が蒸発器12内で均一に混合していないためである。具体的には、都市ガス供給配管2から供給された都市ガスは蒸発器12内に均一な量で存在するわけではなく、都市ガス供給配管2に近い部分の流下流路10と上昇流路11内を短絡的に流れてしまい、供給配管13に流れる都市ガスの濃度が一時的に増加し、その短かい所定時間後には逆に供給配管13に流れる水蒸気の濃度が増加するといった時間的な濃度変動が生じているためであった。

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記課題を解決するため、本発明の水素生成装置は、原料と水蒸気の混合ガスから水蒸

気改質反応により水素を含む改質ガスを生成するための改質触媒層と、前記改質触媒層を加熱するための燃焼ガスを発生する燃焼部と、前記燃焼部により生成した燃焼ガスが流れる燃焼ガス流路と、前記燃焼ガス流路の周囲に設けられた筒状の隔壁を介して前記燃焼ガスと伝熱可能なように構成され、供給された前記原料及び水から前記混合ガスを生成する蒸発部とを備え、前記蒸発部と前記改質触媒層が、前記筒状隔壁の一端の全周囲から混合ガスが改質触媒層に流れ込むよう形成された筒状空間によって接続する。

【0009】

この時、筒状空間に多孔質充填物を備えると改質触媒層へ供給されるガス濃度の均一化に有効である。

【0010】

また、本発明では筒状空間を2分することによって前記原料と水蒸気の混合ガスの流れを2分し、前記混合ガスの流れが筒状隔壁の中心軸を中心として互いに反対方向へ略90度回転する流路を設けると有効である。

【0011】

その具体的な構成としては、前記筒状の空間に板材を配置することによって前記原料と水蒸気の混合ガスの流れを2分し、前記板材の両面に各面から見て同一方向に渦巻き形状の流路を形成することによって前記混合ガスの流れを前記中心軸を中心として互いに反対方向へ略90度回転するものである。

【発明の効果】

【0012】

以上の本発明によれば、改質触媒層に供給する原料ガスと水蒸気の濃度の時間的および空間的不均一性を解消することができ、その結果として改質ガス濃度の時間的および空間的均一性を確保することができる。そのため、改質触媒層やその下流側に接続される変成反応器等の一酸化炭素除去触媒層を有効に使用することができ、触媒量の低減や装置の大きさの小型化に大きく貢献することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

(実施の形態1)

本発明の水素生成装置に設けられた蒸発器は、水蒸気改質反応の熱源を供給する燃焼ガスを生成するバーナを中心として複数の円筒を同心状に配置して形成したものである。

【0014】

本発明の第1の実施形態を図1に示した概略構成図を参照しながら説明する。

【0015】

図1において、前述の従来技術と同等の機能を有する構成要素には同一の符号を付している。従来技術に比較して本発明は、水蒸発器の水蒸気発生部17と改質触媒層端部18の入口部を2つの円盤19と20によって挟まれた円筒形状の空間21によって接続している点に特徴がある。本発明では蒸発器12を通った都市ガスと水蒸気の混合ガスは蒸発器12の全周領域から円筒形状の空間21を経て改質触媒層14に供給され、水素を含む改質ガスが生成される。そのため、都市ガス供給配管2から供給された都市ガスが都市ガス供給配管2に近い部分の流下流路10と上昇流路11内を短絡的に流れ、蒸発部12の出口の一部から高濃度の都市ガスが改質触媒層14へ供給されても、蒸発部12の出口の他の部分からは水蒸気濃度の高い混合ガスが供給されるため改質触媒層14へ供給される都市ガスと水蒸気の濃度を平均化することができ、従来技術で課題となった時間的な改質ガスの濃度変化の発生を抑制することができる。

【0016】

なお、本実施の形態では、蒸発器12及び空間21を円筒形状としたが、円筒に限らず筒状であれば構わない。

【0017】

(実施の形態2)

本発明の第2の実施形態を図2に示した概略構成図を参照しながら説明する。

## 【0018】

図2においても、上記第1の実施形態と同等の機能を有する構成要素には同一の符号を付している。上記第1の実施形態では改質触媒層14に供給される混合ガス濃度の時間的な変動を抑制することができたが、都市ガスは都市ガス供給配管2に近い部分の流下流路10と上昇流路11内を短絡的に流れてしまうために、図中右側から改質触媒層14に供給される混合ガス中には都市ガス濃度が高く、逆に、図中左側から改質触媒層14に供給される混合ガス中には水蒸気濃度が高くなってしまい、空間的な濃度分布が生じてしまう。円筒形状の空間21内を流れる混合ガスの流動状態は層流であり、改質触媒層14に図中の右側と左側から供給される混合ガス同士が混ざり合うことはなく、混合ガス中に濃度分布が存在したまま改質触媒層14へ供給される。また、改質触媒層14の流れも層流状態であり改質触媒層14の内部で原料ガスが混合することもない。そのため、改質触媒層14の図中右側部分と左側部分で原料ガス組成が異なってしまい、生成される改質ガス濃度にも空間的な組成分布が生じてしまう。更に、出口配管16の下流に位置し、水蒸気シフト反応により改質ガス中の一酸化炭素を低減する変成反応器内においてもガスの流動状態は層流であり、濃度分布が存在すると変成反応器内の変成反応までも不均一となり一酸化炭素の除去が不完全になってしまう。

## 【0019】

そこで本実施の形態では、円筒形状の空間21に、直径が円筒形状の空間21の高さの1/3程度の球状のアルミナ粒子22を充填することによって円筒形状の空間21内を流れる流体の流れを乱し、積極的な混合を行なうようにしている。混合ガスは円筒形状の空間21内を通過する際にこのアルミナ粒子22によって三次元的に入り組んだ流れとなり混合が促進させられる。これにより改質触媒層14へ供給される混合ガスの空間的な分布を解消している。

## 【0020】

本実施の形態により改質触媒層14へ供給される原料ガスの空間的な濃度分布を均一化することができる。その結果、改質触媒層14に使用する触媒量や改質ガス中の一酸化炭素濃度を低減するための変成反応触媒や選択酸化触媒の量を削減することができる。

## 【0021】

なお、円筒形状の空間21に充填する充填材は小さなコイル状のものや、金網を小さな円筒状や鞍状に曲げて加工したもの等、3次的に混合を促進する手段であれば良い。

## 【0022】

(実施の形態3)

本発明の第3の実施形態を図3に示した概略構成図を参照しながら説明する。

## 【0023】

図3においても、上記第2の実施形態と同等の機能を有する構成要素には同一の符号を付している。本発明では円筒形状の空間21に図4に示した混合器24を配置することによって、改質触媒層14に接続された触媒配管23へ供給される混合ガス濃度の空間的な分布の均一化を図っている。

## 【0024】

先ず図4に示した混合器24の具体的な構成について説明する。図4において、図(A)と図(B)は各々混合器24の平面図と正面図である。図中、26は上昇流路11から上昇してきた混合ガス25を上下に2分する分割板で触媒配管23とはほぼ同サイズの連通穴27が中央に設けられている。28は分割板26の上面に配置した4枚の渦巻形状の流路規定部材、平面図(A)に破線で示した29は分割板26の下面に配置した4枚の渦巻形状の流路規定部材、30と31は分割板26によって各々分割板26の上下に分割された混合ガスである。流路規定部材28と流路規定部材29は平面図(A)では互いに逆方向に回転した渦巻き状であるが、分割板26の各々の面から見ると同方向に回転した渦巻き状である。これらの流路規定部材の形状は各流路に流れる流量を等しくするため、同一形状であることが望ましい。

## 【0025】

以下、混合器 24 の作用を、図 5 と図 6 を用いて説明する。

【0026】

図 5 には図 4 に示した分割板 26 の上側に分割された混合ガス 30 の流れを図示している。図 5 は図 4 の平面図と同じ方向から見た平面図であり、図には便宜的に分割板 26 の上側に四方向から流入する混合ガスを各々異なった色とハッチングの矢印で示している。図のように、例えば白矢印で示した図中右側から流入した混合ガスは流路規定部材 28 によって流路を変更され、図中上側から連通穴 27 へ流れ込む。また図中左側から流入する黒矢印の混合ガスは流路規定部材 28 によって流路を変更されて図中下側から連通穴 27 へ流れ込む。このように、流路規定部材 28 は分割板 26 の上側に流入した混合ガスの向きを左へ  $90^\circ$  回転させて連通穴 27 へ送り込む作用を有する。

【0027】

一方、図 4 の分割板 26 の下側に分岐された混合ガス 31 の流れを図 6 に示す。図 6 も図 5 と同様に図 4 の平面図と同じ方向から見た平面図である。図 6 にも図 5 と同様に分割板 26 の下側に四方から流入する混合ガスを各々異なった色とハッチングの矢印で示している。図のように、例えば白矢印で示した図中右側から流入した混合ガスは流路規定部材 29 によって流路を変更され、図中下側から連通穴 27 へ流れ込む。また図中左側から流入する黒矢印の混合ガスは流路規定部材 29 によって流路を変更されて図中上側から連通穴 27 へ流れ込む。このように、流路規定部材 29 は分割板 26 の下側に流入した混合ガスの向きを右へ  $90^\circ$  回転させて連通穴 27 へ送り込む作用を有する。

【0028】

以上の結果、連通穴 27 の上側からは分割板 26 の右側と左側から流入した混合ガスの各々半分づつの量の混合ガスが流入し、同様に連通穴 27 の下側からは分割板 26 の右側と左側から流入した混合ガスの各々半分づつの量の混合ガス量が流入する。そのため、例えば分割板 26 へ右側から都市ガス濃度の高い混合ガスが供給され、左側から水蒸気濃度の高い混合ガスが供給された場合のように混合ガス濃度が空間的に著しく分布している場合であっても、連通穴 27 の上下では各々が半分づつの量で供給されるため空間的な濃度分布を均一化することができる。その結果、触媒配管 23 を通って改質触媒層端部 18 へ供給される混合ガス濃度の偏りをなくすことができ、改質ガスの濃度も空間的に均一化することができる。

【0029】

本実施の形態によっても改質触媒層 14 へ供給される原料ガスの空間的な濃度分布を均一化することができ、改質触媒層 14 の触媒量や変成反応触媒や選択酸化触媒の量を削減することができる。

【0030】

なお、上記実施の形態では一つの混合器 24 を用いた場合について説明したが、複数の混合器を用いてもよい。図 7 には上記混合器と同一形状の混合器 A32 と混合器 B33 の 2 つの混合器を  $45^\circ$  ずらして配置した場合の構成の平面図と正面図を例示している。図中、34 と 35 と 36 は各々混合器 A32 の分割板と上側流路規定部材と下側流路規定部材、37 と 38 と 39 は各々混合器 B33 の分割板と上側流路規定部材と下側流路規定部材、40 は 2 つの混合器をの間に配置した中央部に穴を有する円盤状の仕切り板である。これらの構成要素の作用は上記説明と同様であるが、混合器を複数用いることにより、混合ガスの空間的な濃度の偏りをより均一化することができる。

【0031】

また、上記実施の形態の混合器では流路規定部材の数は分割板 26 の片面あたり 4 枚であったが、流路規定部材の数は 4 枚に限定する必要はない。図 8 には分割板 26 の片面あたり 8 枚の流路規定部材を用いた場合の混合器の構成を例示している。図中、41 と 42 と 43 は各々分割板と上側の流路規定部材と下側の流路規定部材である。このように流路規定部材の枚数を増やすことによっても混合ガスの空間的な濃度の偏りをより均一化することができる。

【0032】

更に、流路規定部材の詳細な形状は上記実施の形態の形状に限定される必要はない。混合ガスの流量や流れやすさ等に応じて、より簡単な形状や複雑な形状でもよい。

#### 【0033】

上記実施の形態では少なくとも炭素と水素から構成される有機化合物を含んだ原料として都市ガスを用いた場合について説明したが、本発明の技術は原料の種類を限定するものではなく、アルコールやLPGガスや灯油等を原料とした場合に対しても有効である。特に、アルコールや灯油のように液体燃料を使用して水と一緒に混ぜて蒸発させる場合は、これらの原料ガスと水蒸気の空間的な濃度分布が生じやすいため、極めて有効な技術である。

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0034】

本発明の水素生成装置は、改質ガス濃度の時間的および空間的均一性を確保することができるという効果を有し、水素生成装置だけでなくこれを用いた燃料電池システムとして有用である。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0035】

【図1】本発明の第1の実施形態における水素生成装置の構成図

【図2】本発明の第2の実施形態における水素生成装置の構成図

【図3】本発明の第3の実施形態における水素生成装置の構成図

【図4】本発明の第3の実施形態における水素生成装置内のガス混合器の構成図

【図5】本発明の第3の実施形態におけるガス混合器の作用を示す図

【図6】本発明の第3の実施形態におけるガス混合器の作用を示す図

【図7】本発明の第3の実施形態におけるガス混合器の別の態様を示す図

【図8】本発明の第3の実施形態におけるガス混合器の別の態様を示す図

【図9】従来の水素生成装置の構成図

#### 【符号の説明】

#### 【0036】

- 1 水素生成器
- 2 都市ガス供給配管
- 3 水供給配管
- 4 燃焼バーナー
- 5 燃焼ガス流路
- 6 燃焼ガス流路
- 7 燃焼ガス流路
- 8 燃焼ガス流路
- 9 燃焼ガス排気口
- 10 流下流路
- 11 上昇流路
- 12 蒸発器
- 13 供給配管
- 14 改質触媒層
- 15 改質ガス流路
- 16 出口配管
- 17 水蒸気発生部
- 18 改質触媒層端部
- 19 円盤
- 20 円盤
- 21 円筒形状の空間
- 22 アルミナ粒子
- 23 触媒配管

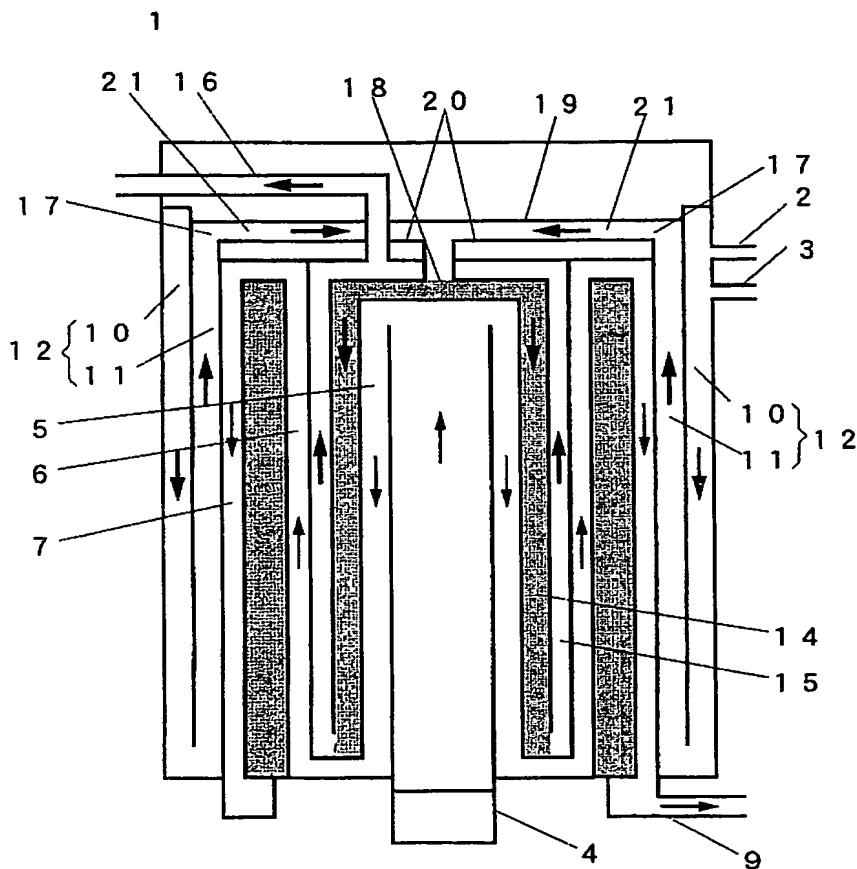


2 4	混合器
2 5	混合ガス
2 6	分割板
2 7	連通穴
2 8	流路規定部材
2 9	流路規定部材
3 0	混合ガス
3 1	混合ガス
3 2	混合器 A
3 3	混合器 B
3 4	分割板
3 5	流路規定部材
3 6	流路規定部材
3 7	分割板
3 8	流路規定部材
3 9	流路規定部材
4 0	仕切り板
4 1	分割板
4 2	流路規定部材
4 3	流路規定部材

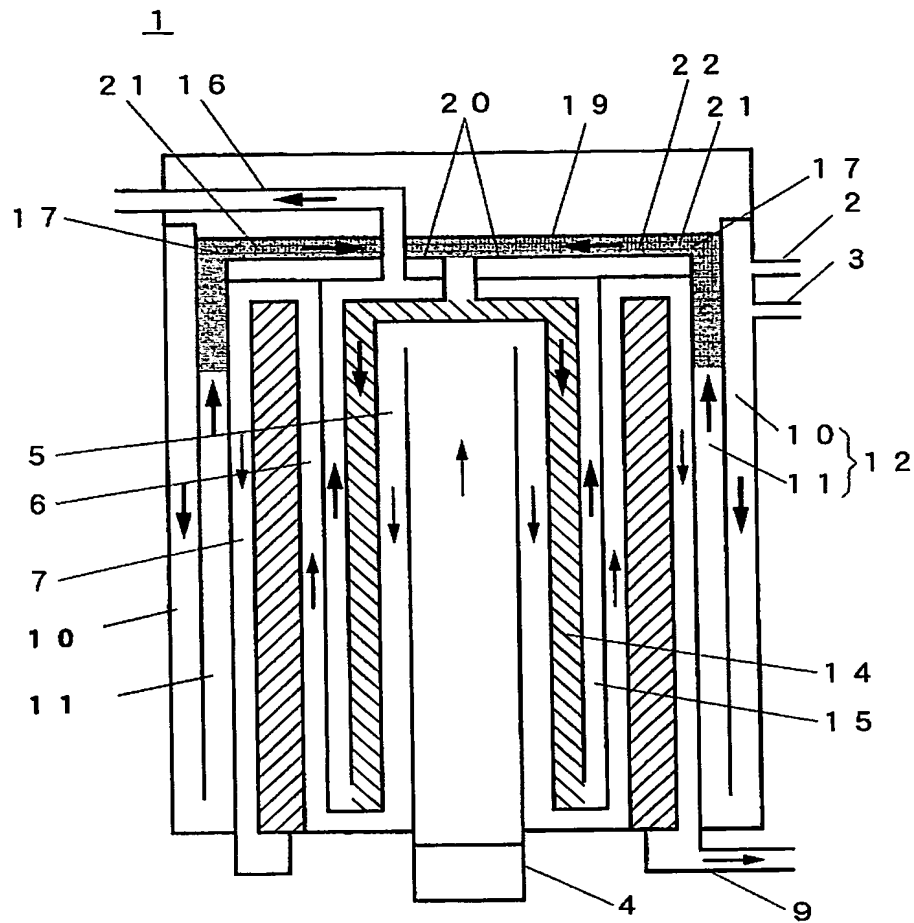
【書類名】 図面

【図 1】

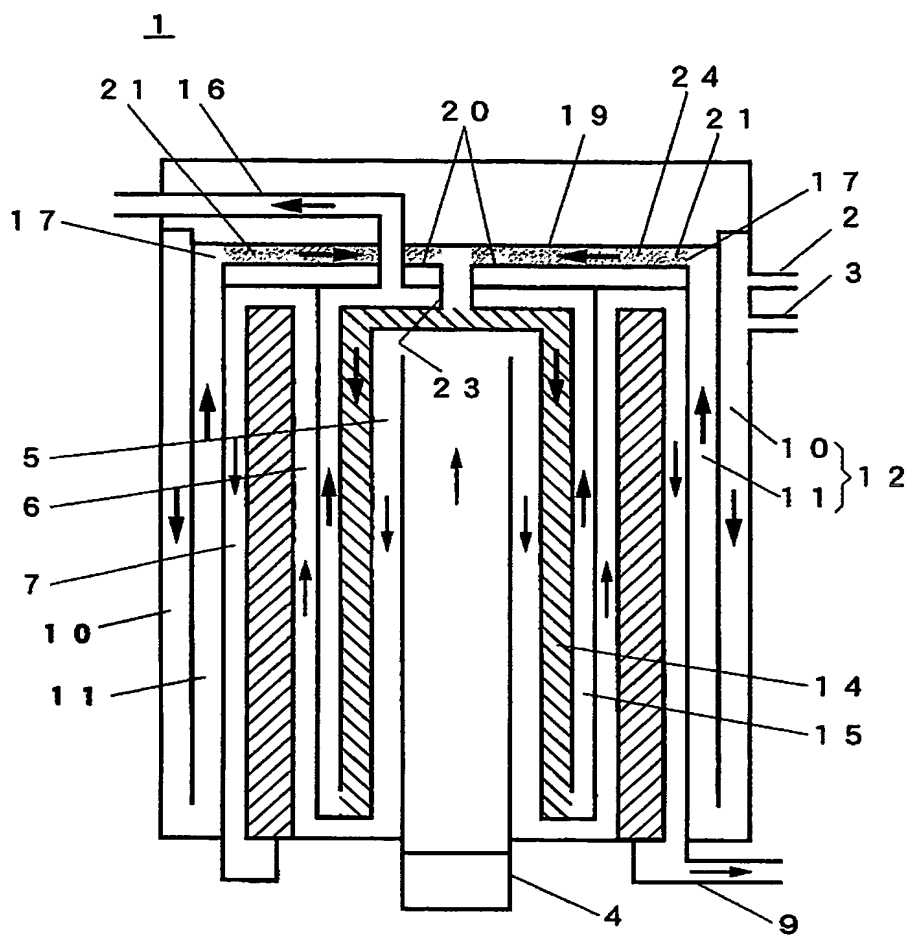
- |             |          |          |         |
|-------------|----------|----------|---------|
| 1 . . .     | 水素生成器    | 18 . . . | 改質触媒層端部 |
| 2 . . .     | 都市ガス供給配管 | 19 . . . | 円盤      |
| 3 . . .     | 水供給配管    | 20 . . . | 円盤      |
| 4 . . .     | 燃焼バーナー   | 21 . . . | 円筒形状の空間 |
| 5 ~ 7 . . . | 燃焼ガス流路   | 22 . . . | アルミナ粒子  |
| 9 . . .     | 燃焼ガス排気口  | 23 . . . | 触媒配管    |
| 10 . . .    | 流下流路     | 24 . . . | 混合器     |
| 11 . . .    | 上昇流路     | 25 . . . | 混合ガス    |
| 12 . . .    | 蒸発器      | 26 . . . | 分割板     |
| 13 . . .    | 供給配管     | 27 . . . | 連通穴     |
| 14 . . .    | 改質触媒層    | 28 . . . | 流路規定羽根  |
| 15 . . .    | 生成ガス流路   | 29 . . . | 流路規定羽根  |
| 16 . . .    | 出口配管     | 30 . . . | 混合ガス    |
| 17 . . .    | 水蒸気発生部   | 31 . . . | 混合ガス    |



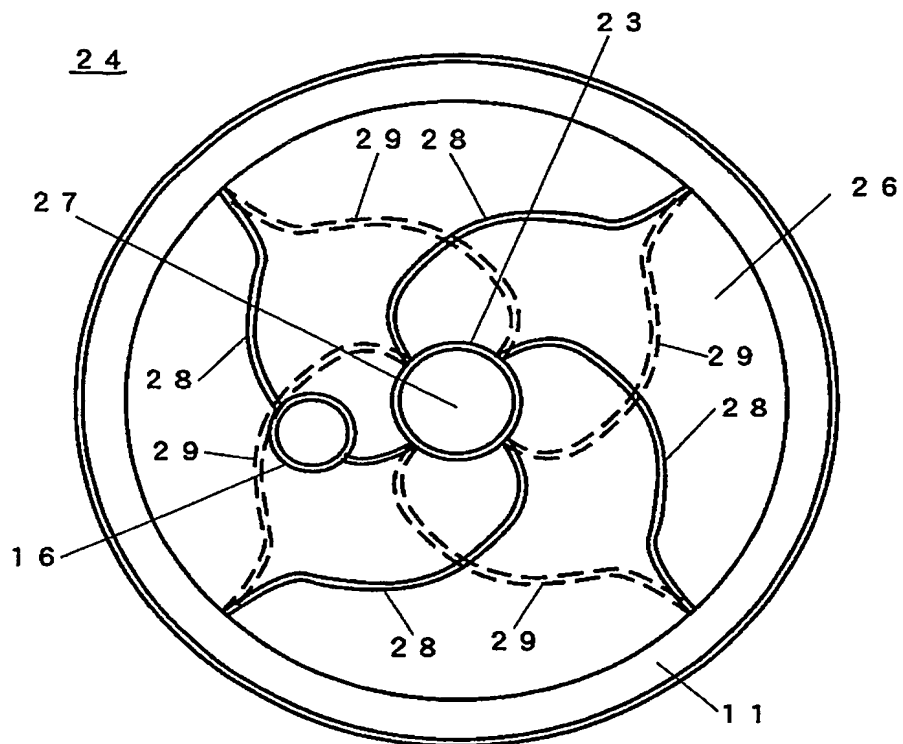
【図 2】



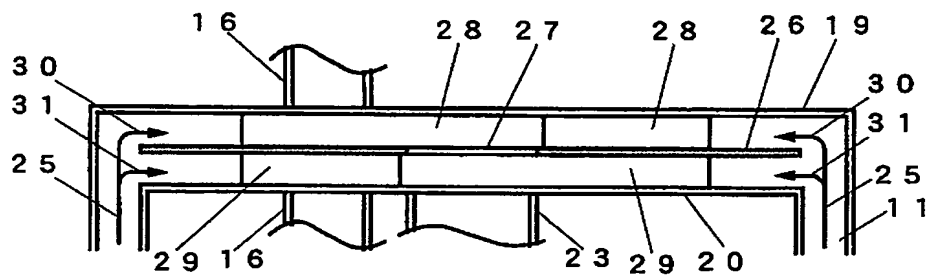
【図 3】



【図 4】

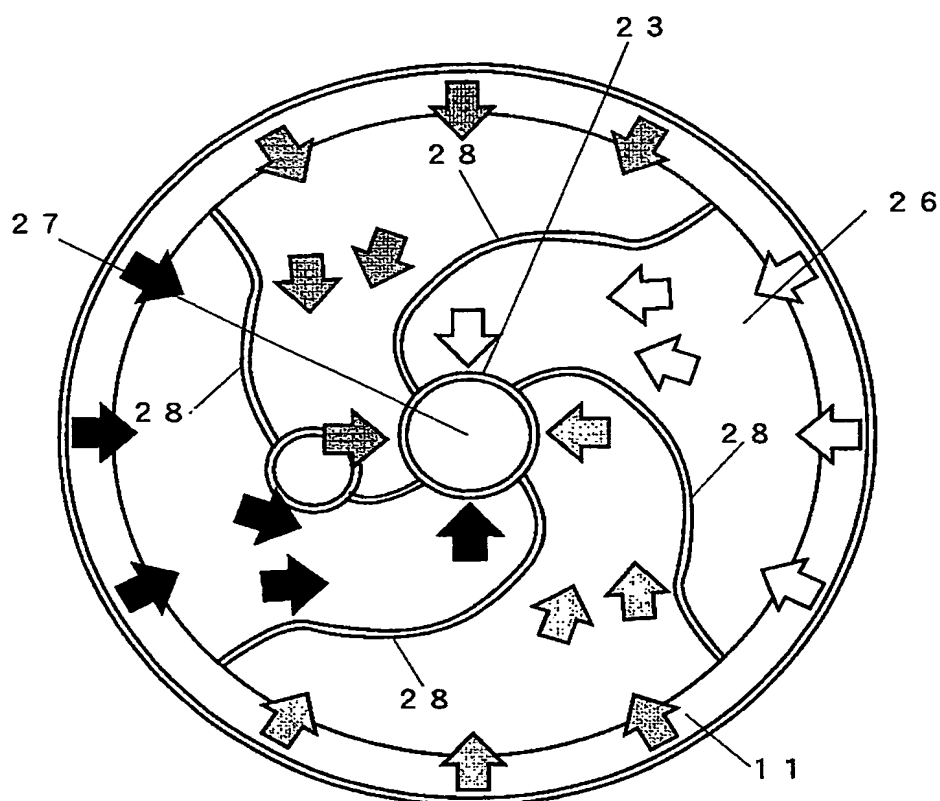


(A) 平面図

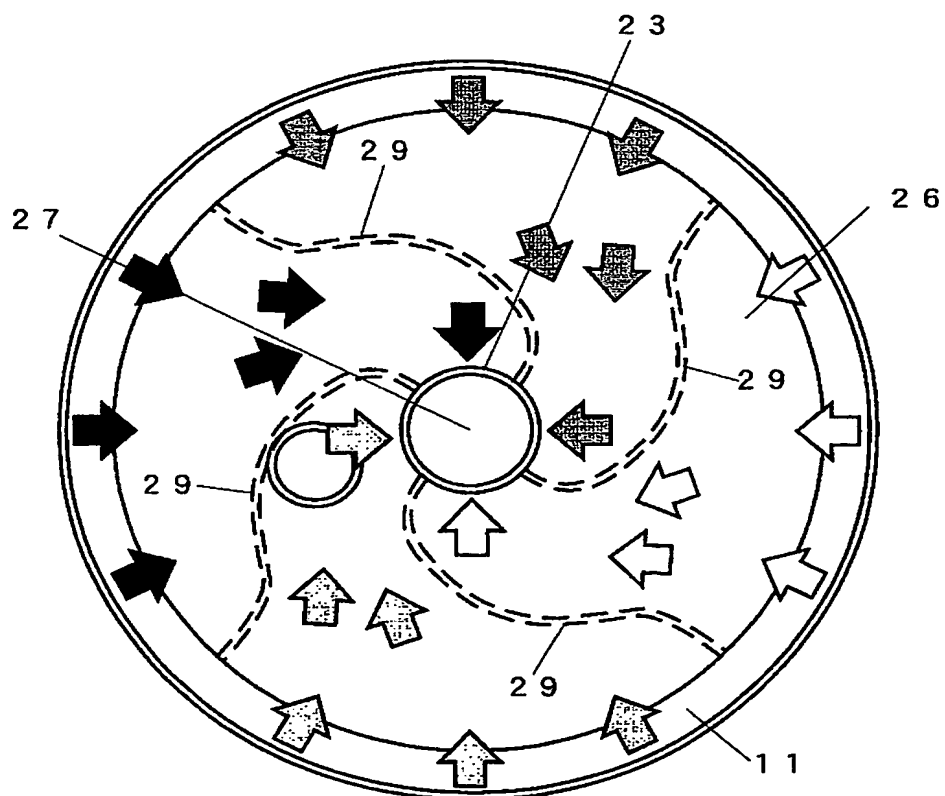


(B) 正面図

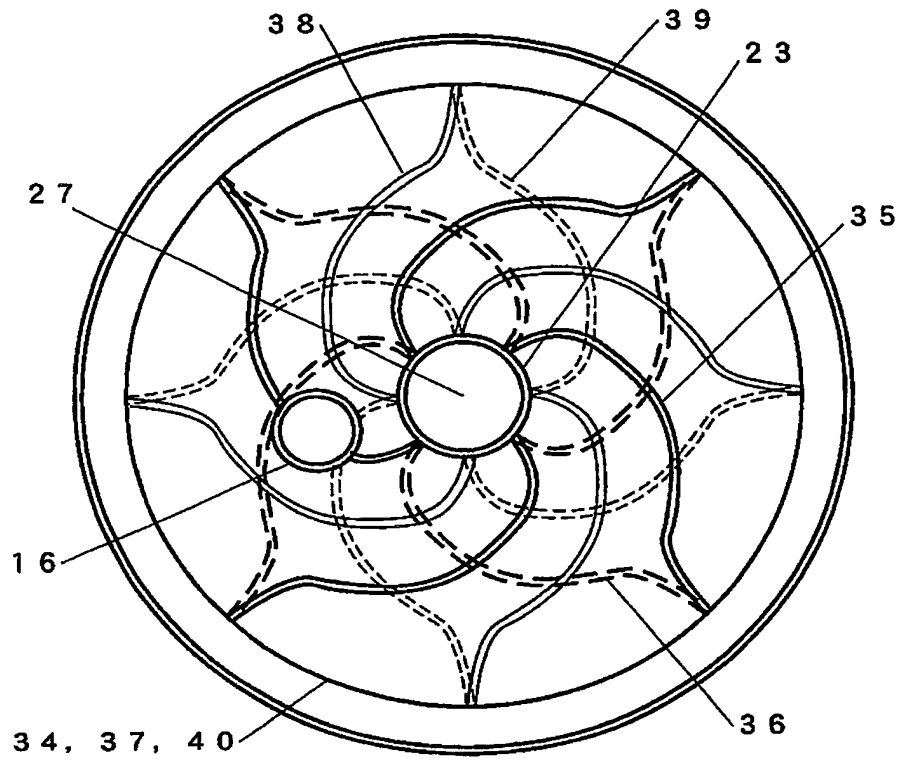
【図 5】



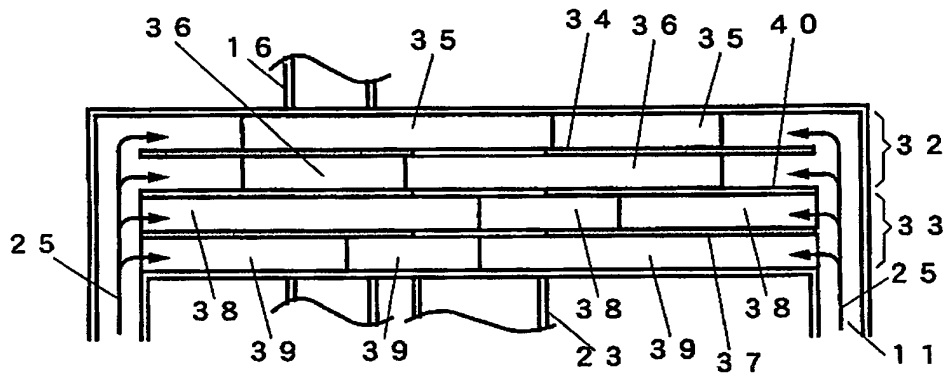
【図 6】



【図 7】

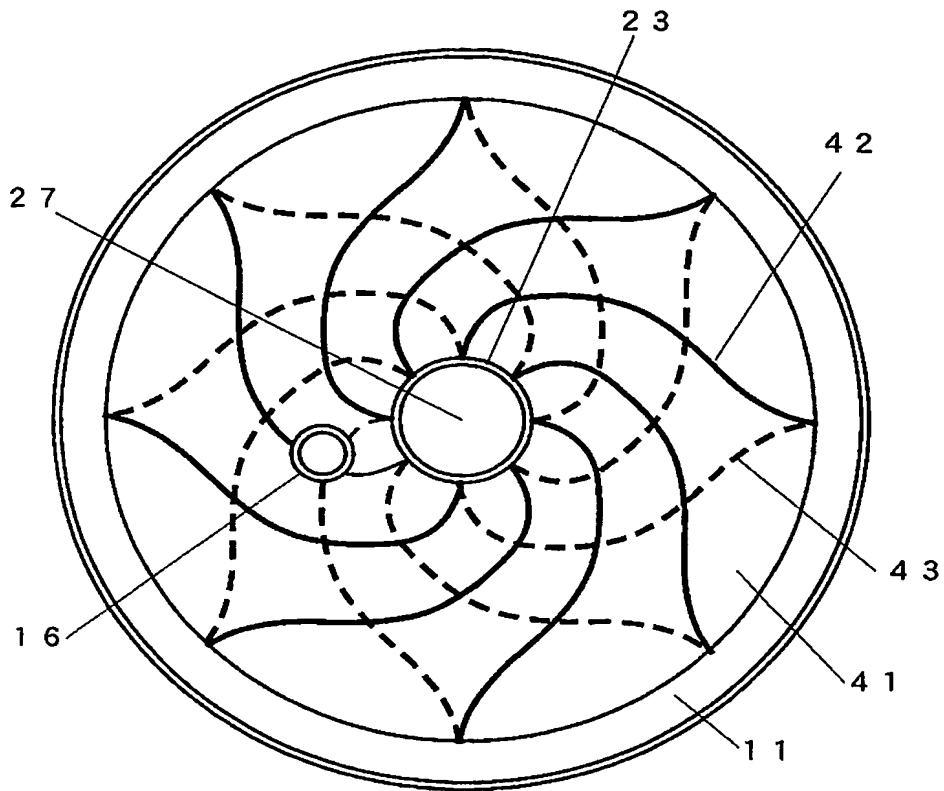


(A) 平面図



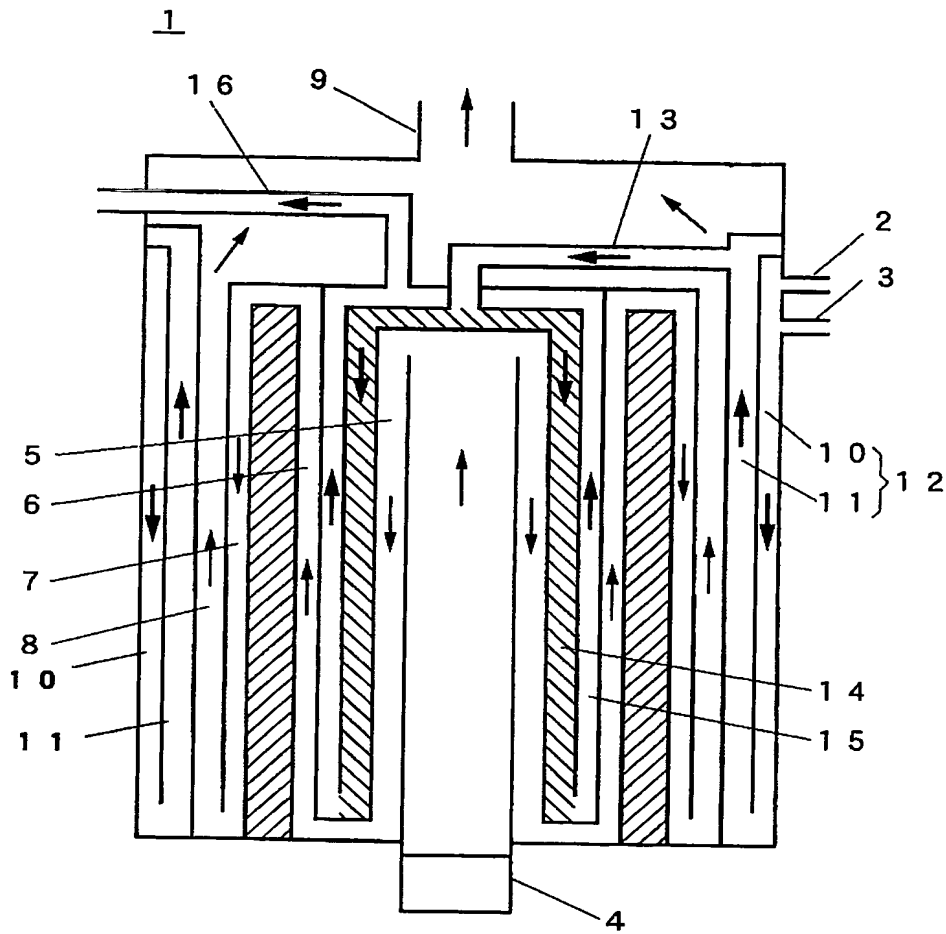
(B) 正面図

【図 8】





【図 9】



## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】燃料電池発電装置の改質触媒層に供給される原料ガスと水蒸気の濃度の時間的・空間的分布が生じると、改質ガスの濃度にも分布が生じてしまい反応転嫁率が低下したり、使用する触媒量が増大してしまうという課題があった。

【解決手段】改質用水蒸発器の水蒸気発生部と前記改質触媒層の端部を2つの円盤によって円筒形状の空間によって接続する。また上記円筒形状の空間に充填材を充填する。また上記円筒形状の空間を形成する2つの円盤の間の空間を2分することによって前記原料と水蒸気の混合ガスの流れを2分し、前記2分した混合ガスの流れを前記中心軸を中心として互いに反対方向へ略90度回転する流路を設けたガス混合器を用いる。

【選択図】図1

特願 2 0 0 3 - 4 1 0 0 1 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 8 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地
氏 名	松下電器産業株式会社

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/018411

International filing date: 09 December 2004 (09.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2003-410014  
Filing date: 09 December 2003 (09.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 10 February 2005 (10.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse